

ANALISIS POLA DIFRAKSI PADA INGOT PADUAN Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe DAN Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe-0,5%Mo

Jan Setiawan, Futichah

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN

Kawasan Puspipstek Serpong, Tangerang Selatan, 15314

e-mail: djan@batan.go.id

(Naskah diterima tanggal: 24-08-2012, disetujui tanggal: 19-09-2012)

ABSTRAK

ANALISIS POLA DIFRAKSI PADA INGOT PADUAN Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe DAN Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe-0,5%Mo. Penambahan unsur pemadu serta perlakuan mekanik dan termal pada logam paduan berbasis zirkonium, sangat berpengaruh terhadap struktur mikro yang terbentuk pada paduan tersebut. Oleh karena itu analisis pola difraksi yang terkait dengan struktur mikro paduan sangat penting untuk dilakukan. Analisis pola difraksi telah dilakukan untuk mempelajari karakteristik mikrostruktur ingot paduan zirlo (Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe) dan zirlo-Mo (Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe-0,5%Mo). Analisis dilakukan terhadap pola difraksi ingot awal dari kedua paduan dan yang telah mengalami proses β -quenching serta perolan panas. Analisis pola difraksi ini adalah untuk mempelajari pengaruh proses perlakuan β -quenching, rol panas serta penambahan Mo pada paduan zirlo terhadap perubahan orientasi bidang, *microstrain* serta besaran rerata ukuran domain terboboti volume (ukuran kristalit). Ingot logam zirlo dan zirlo-Mo yang telah dipotong, serta cuplikan hasil perlakuan β -quenching dan perolan panas dilakukan preparasi untuk mendapatkan benda uji kristalografi. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa proses β -quenching dan perolan panas memberikan pengaruh terhadap orientasi bidang, *microstrain* dan besaran rerata ukuran domain terboboti volume.

Kata kunci: zirlo, XRD, analisis pola difraksi.

ABSTRACT

PROFILE LINE DIFFRACTION ANALYSIS OF Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe AND Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe-0,5%Mo ALLOYS. The addition of alloying elements as well as mechanical and thermal treatment to metal zirconium based alloys have significant effects on the microstructure of the alloys. Analysis of profile line diffraction associated with alloys microstructure is therefore important to be done. In this research, profile line diffraction has been done to study the characteristic of zirlo (Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe) and zirlo-Mo (Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe-0,5%Mo) ingot alloys. Diffraction pattern analysis was done to both initial ingots and alloys which have undergone β -quenching and hot rolled process. Diffraction pattern analysis is aimed to study the effect of β -quenching, hot rolled process and the addition of Mo on changes on plane orientation, *microstrain* and the average volume-weighted domain size (crystallite size). Cuts of zirlo and zirlo-Mo and samples of β -quenching and hot rolled process alloys were used for the preparation of crystallography specimens. The analysis results show that β -quenching and hot rolled process have influenced the plane orientation, *microstrain* and its average volume-weighted domain size.

Key words: zirlo, XRD, profile line diffraction analysis.

PENDAHULUAN

Zircaloy merupakan bahan struktur yang digunakan sebagai kelongsong bahan bakar nuklir untuk reaktor PWR (Pressure Water Reactor). Lembaran dan tabung zircaloy yang digunakan dalam reaktor dibentuk melalui pengerjaan dingin dan perlakuan panas^[1]. Unsur pepadu yang ditambahkan dalam paduan zircaloy, pengerjaan dingin dan perlakuan panas akan berpengaruh pada mikrostruktur yang terbentuk pada lembaran atau tabung zircaloy. Oleh karena itu analisis pola difraksi yang terkait dengan struktur mikro paduan sangat penting untuk diketahui. Mikrostruktur meliputi bentuk dan ukuran butir, presipitat dan cacat-cacat mikro seperti dislokasi dan ukuran domain pada sistem kristalografi logam. Parameter mikrostruktur, umumnya densitas dislokasi dan ukuran domain diyakini mempengaruhi perilaku deformasi zircaloy ketika digunakan di dalam reaktor^[1]. Pola difraksi XRD (X-Ray Diffraction) menunjukkan karakteristik dari keadaan material tersebut. Bentuk pola difraksi dipengaruhi oleh peralatan uji dan bentuk sampel, yang lebih dikenal sebagai pelebaran instrumental (*instrumental broadening*). Pelebaran instrumental ini perlu dihilangkan untuk memperoleh pelebaran metalurgi yang sebenarnya (sebagai akibat perubahan mikrostruktur) pada sampel. Ketika pola difraksi diperoleh, ukuran domain, *microstrain* dan densitas dislokasi dapat ditentukan^[2].

Dalam penelitian ini telah dilakukan pembuatan ingot zirlo yaitu paduan berbasis Zr dengan komposisi paduan Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe dan Zirlo-Mo yaitu paduan Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe yang ditambah dengan 0,5%Mo. Analisis pola difraksi XRD dilakukan pada zirlo dan zirlo-Mo tersebut. Tujuan penelitian ini adalah untuk mempelajari pengaruh proses perlakuan β -*quenching*, rol panas serta penambahan Mo pada paduan zirlo terhadap perubahan

orientasi bidang, *microstrain* serta besaran rerata ukuran domain terboboti volume (ukuran kristalit). Hasil dari analisis mikrostruktur ini dapat digunakan sebagai data dukung dalam fabrikasi lebih lanjut pada paduan zirlo-Mo. Analisis dilakukan pada sampel setelah pemotongan/preparasi awal, setelah β -*quenching* dan setelah rol panas. Kemudian dilakukan analisis pola difraksi yang dilakukan menggunakan teori atau pendekatan perhitungan dari analisis Williamson-Hall dengan asumsi ukuran pelebaran profil dan *strain* merupakan fungsi Lorentzian. Penentuan fasa dan parameter kisi dilakukan dengan bantuan dari basis data kristalografi COD 23 Agustus 2012.

TATA KERJA

Bahan dan alat

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah ingot paduan zirlo dengan komposisi Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe dan zirlo-Mo dengan komposisi Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe yang ditambah dengan 0,5%Mo.

Peralatan yang digunakan adalah *diamond cutting*, tungku pemanas, air pendingin untuk proses β -*quenching*, mesin rol dan X-ray difraktometer PW1710 dengan sumber sinar-X dari Cu.

Cara kerja

Pemotongan sampel ingot zirlo-Mo

Paduan zirlo dan zirlo-Mo dalam bentuk ingot, dilakukan pemotongan untuk pencuplikan sampel dengan menggunakan *diamond cutting* sehingga diperoleh sampel uji dengan ukuran 20 x 10 mm. Sampel uji yang telah dipotong terlihat pada Gambar 1. Masing-masing sampel dipreparasi untuk dilakukan uji kristalografi, perlakuan panas (β -*quenching*) dan perolan panas



Gambar 1. Sampel zirlo-Mo yang sudah terbelah.

Perlakuan panas dan pendinginan cepat dalam air (water quenching)

Ingot zirlo dan zirlo-Mo dengan ukuran 20 x 10 mm, dipanaskan dalam tungku pemanas dengan temperatur di daerah fasa- β (980°C) selama 2 jam. Dari pemanasan ingot pada suhu fasa- β , kemudian dilakukan proses pendinginan cepat (*quenching*) menggunakan media pendingin air. Masing-masing sampel dipreparasi untuk dilakukan uji kristalografi dan pengerolan panas.

Pengerolan panas

Untuk memperoleh paduan zirlo atau zirlo-Mo berupa lembaran, perlu dilakukan perolan. Proses perolan yang dilakukan adalah proses perolan panas yang akan membuat paduan mengalami deformasi pada temperatur yang diberikan yaitu di daerah temperatur rekristalisasi. Perolan panas dilakukan pada temperatur 850 °C, yang ditahan selama 1 jam. Reduksi ketebalan paduan yang dirol diharapkan mampu mencapai hingga 60%. Sampel uji hasil proses pengerolan panas ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Hasil rol berbentuk pelat zirlo-Mo

Karakterisasi XRD

Setiap tahapan proses, dilakukan karakterisasi XRD untuk mengetahui pengaruh tiap proses terhadap paduan zirlo dan zirlo-Mo. Karakterisasi XRD pada sampel paduan zirlo-Mo juga dilakukan untuk mengetahui bagaimana pengaruh dari penambahan Mo terhadap parameter kristal paduan zirlo. Karakterisasi XRD dilakukan dengan menggunakan sumber sinar X dari Cu dengan sudut pengukuran dari 10 sampai 90 derajat. Analisis pola difraksi dilakukan menggunakan teknik Williamson-Hall dimana metode ini mampu membedakan pengaruh ukuran kristalit dengan mikro strain, meskipun mengabaikan bentuk actual dari puncak dan hanya menggunakan integrasi pelebaran.

HASIL DAN PEMBAHASAN

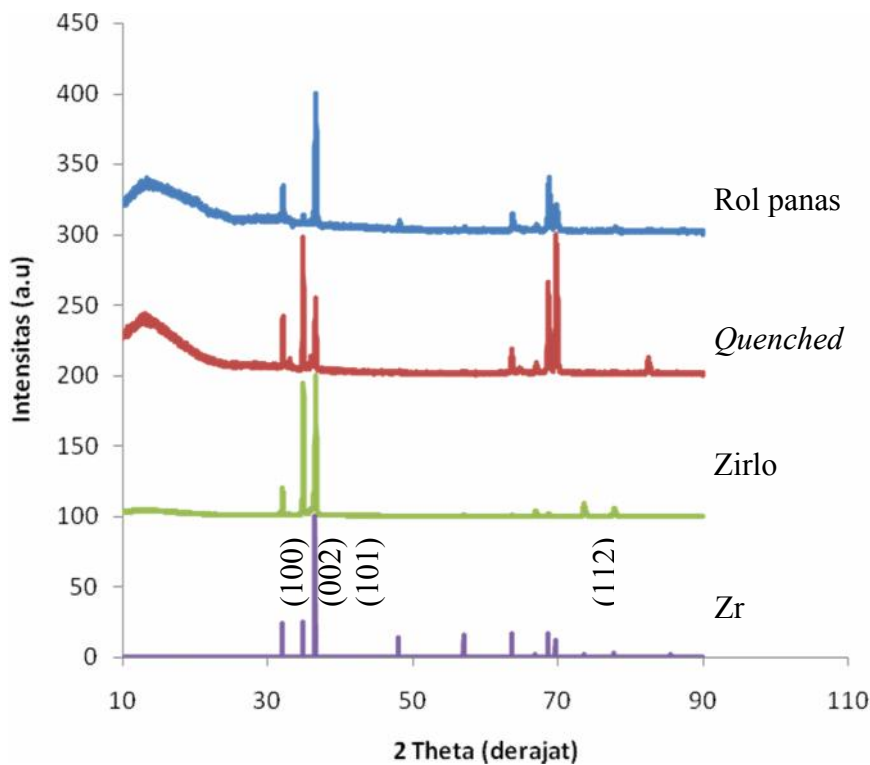
Pola difraksi paduan zirlo

Hasil difraksi sinar-X paduan zirlo dan zirlo-Mo ditunjukkan pada Gambar 3 dan 4. Gambar 3 menunjukkan adanya perubahan pola difraksi paduan zirlo terhadap referensi dari pola difraksi zirkonium. Pola difraksi paduan zirlo yang di *quenching* mengakibatkan terjadinya orientasi butir pada bidang (112) dan (201), sedangkan setelah dilakukan perolan panas perubahan yang signifikan terjadi pada bidang (002), (112) dan (201). Pada sudut Bragg di bawah 30 derajat terlihat pelebaran puncak yang diakibatkan masih ada bagian yang belum terbentuk kristalin pada paduan. Pelebaran sudut Bragg tersebut terlihat lebih melebar setelah dirol panas dibandingkan pada saat di *quenching*. Pelebaran ini menunjukkan sebagian paduan yang awalnya belum kristalin, mengalami deformasi sehingga bentuk butiran menjadi lebih besar dan terorientasi searah dengan arah perolan.

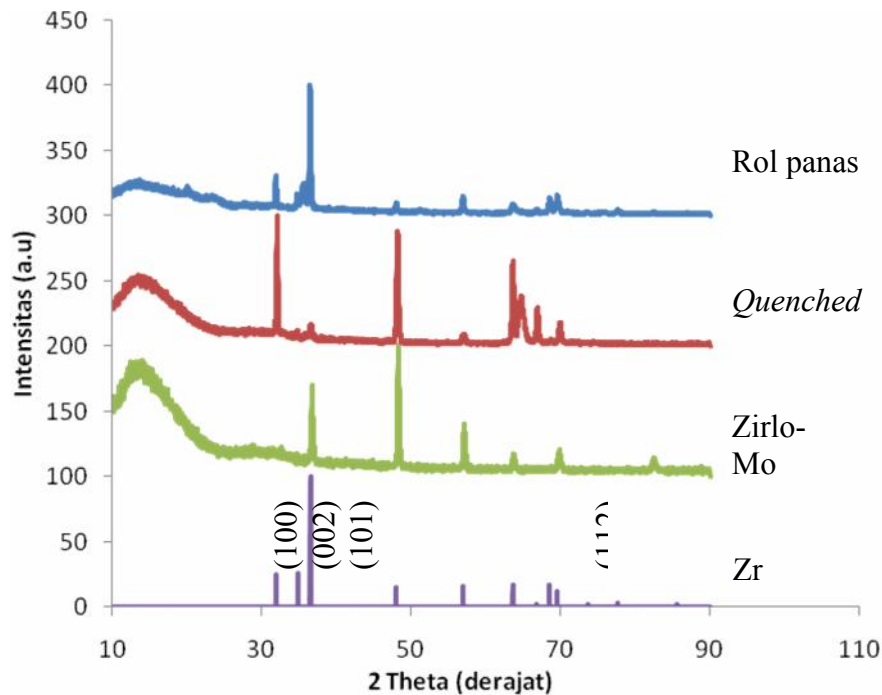
Perubahan pola difraksi paduan zirlo-Mo terhadap referensi dari pola difraksi zirkonium ditunjukkan pada Gambar 4. Pola

difraksi paduan zirlo-Mo menunjukkan paduan zirlo-Mo terorientasi pada bidang (102). Hal ini serupa dengan paduan zirlo yang mengalami pelebaran pola difraksi pada sudut di bawah 30 derajat, paduan zirlo-Mo juga memperlihatkan karakteristik yang serupa. Fenomena ini menunjukkan terjadi deformasi yang membuat butiran paduan yang lebih besar, meningkatkan tingkat kristalin paduan dan terorientasi searah dengan arah perolan. Dari hasil yang diperoleh terlihat bahwa proses perolan panas mampu meningkatkan kristalisasi dan

menimbulkan orientasi pada bidang yang ditunjukkan oleh meningkatnya intensitas bidang-bidang tertentu pada pola difraksi dari paduan zirlo maupun zirlo-Mo. Kedua paduan tersebut setelah mengalami proses perolan panas menunjukkan pola difraksi yang terorientasi pada bidang (101). Kedua paduan yang terbentuk teridentifikasi dari basis data kristalografi COD 23 Agustus 2012, paduan zirlo yang terbentuk memiliki sistem kristal heksagonal dengan *space group* $P 6_3/m m c^{[4]}$.



Gambar 3. Difraktogram paduan Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe.



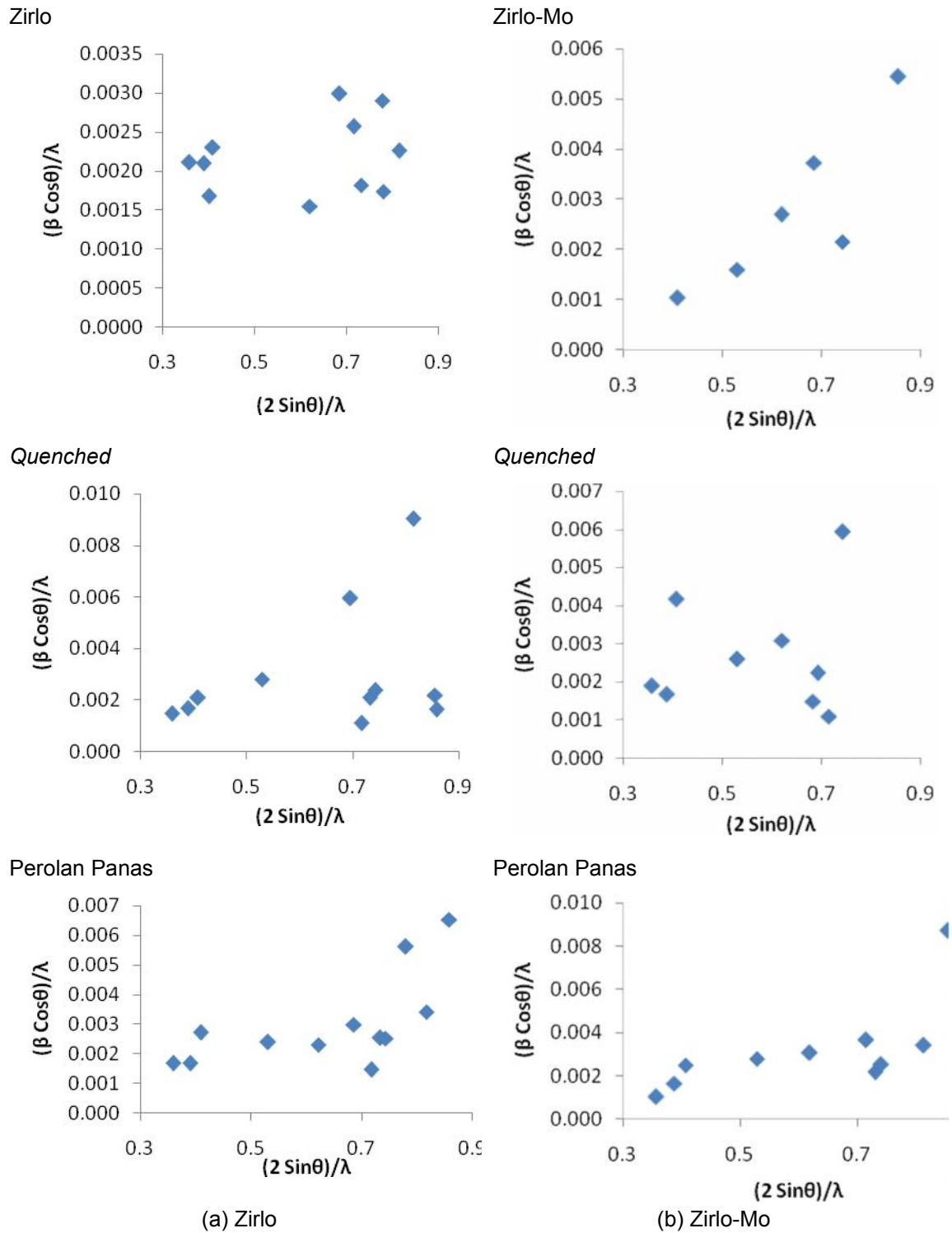
Gambar4. Difraktogram paduan Zr-1%Sn-1%Nb-0,1%Fe,0.5%Mo.

Analisis Williamson-Hall

Analisis Williamson-Hall pada pola difraksi sinar X, berasumsi bahwa ukuran pelebaran profil dan *strain* merupakan fungsi Lorentzian. Hubungan antara integral pelebaran β , rerata ukuran domain terboboti volume atau ukuran kristalit (D_v) dan *microstrain* (ϵ), sudut difraksi (θ) dan panjang gelombang sinar-X (λ), dituliskan sebagai berikut^[1]:

$$\frac{\beta \cos \theta}{\lambda} = \frac{1}{D_v} + 2\epsilon \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)$$

Penentuan nilai D_v dan ϵ ditentukan dengan menyelesaikan regresi linier dari plot $(2 \sin \theta)/\lambda$ terhadap $(\beta \cos \theta)/\lambda$ dari puncak-puncak sudut Bragg dari pola difraksi yang diperoleh dan berkorelasi dengan paduan zirlo dan zirlo-Mo. D_v ditentukan dari titik potong garis, sedangkan ϵ ditentukan dari kemiringan garis. Dari data difraktogram Gambar 3 dan 4 diplotkan nilai-nilai $(2 \sin \theta)/\lambda$ dan $(\beta \cos \theta)/\lambda$ yang ditunjukkan pada Gambar 5. Hasil perolehan nilai D_v dan ϵ dari regresi linier ditabelkan pada Tabel 1.



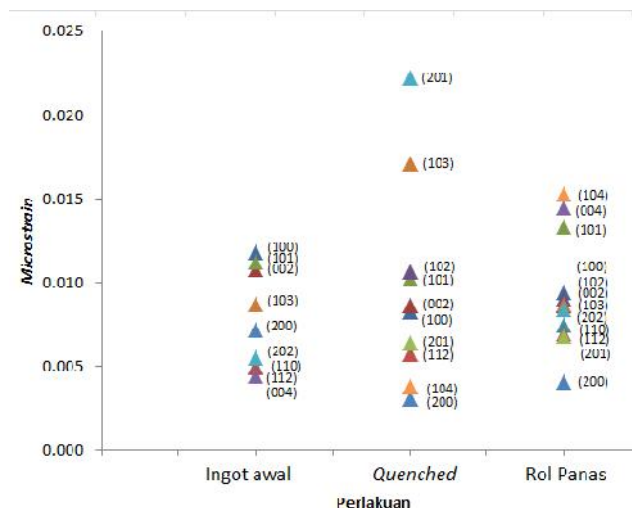
Gambar 5. Plot Williamson-Hall untuk (a) Zirlo dan (b) Zirlo-Mo.

Tabel 1. Rerata ukuran domain terboboti volume dan *microstrain*.

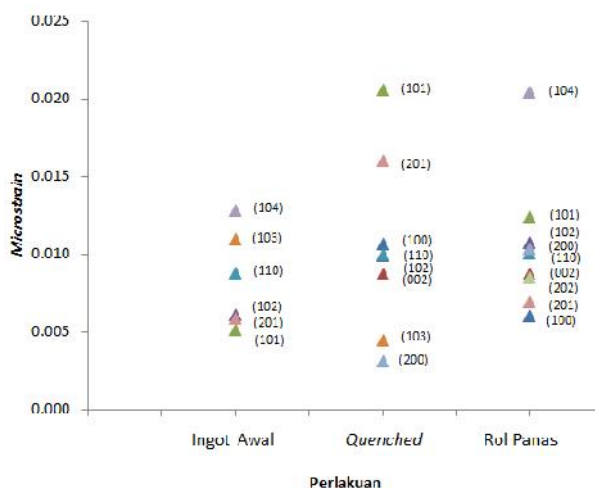
Sampel	Perlakuan	Rerata ukuran domain terboboti volume (D_v) Å	<i>Microstrain</i> ($\times 10^{-4}$) (ϵ)
Zirlo	Ingot tanpa perlakuan	$1428,5 \pm 0,3$	9
	<i>Quenched</i>	$250,0 \pm 0,3$	2
	Perolan panas	$181,8 \pm 0,3$	2,5
Zirlo-Mo	Ingot tanpa perlakuan	$357,1 \pm 0,3$	43,5
	<i>Quenched</i>	$526,3 \pm 0,3$	7,5
	Perolan panas	$666,7 \pm 0,3$	37,5

Dari analisis Wiliamson-Hall pada Tabel 1, terlihat nilai rerata ukuran domain terboboti volume (D_v) pada Zirlo menurun secara signifikan seiring diberikan perlakuan panas, berbeda dengan Zirlo-Mo yang relatif meningkat seiring dengan pemberian perlakuan panas. Penambahan unsur Mo memberikan pengaruh yang signifikan terhadap paduan Zirlo, penambahan unsur Mo pada paduan ini mendesak struktur kristal Zirlo yang ditunjukkan oleh nilai *microstrain* (ϵ) yang lebih tinggi dibanding paduan Zirlo tanpa Mo. Pada paduan Zirlo sebaran nilai dalam grafik pada Gambar 3 menunjukkan nilai *microstrain* pada ingot paduan tidak *isotropic*. Hubungan antara

perlakuan *quenched* dan perolan panas terhadap *microstrain* ditunjukkan pada Gambar 6. Perbedaan nilai *microstrain* pada tiap-tiap bidang kristal paduan zirlo menunjukkan bentuk domain paduan tersebut juga tidak *spherically isotropic*^[2,3]. Hal yang sama juga terjadi pada paduan Zirlo-Mo, sebaran nilai pada Gambar 4 menunjukkan nilai *microstrain* pada ingot yang tidak *isotropic*. Hubungan antara perlakuan *quenched* dan perolan panas terhadap *microstrain* ditunjukkan pada Gambar 7, terlihat nilai *microstrain* yang berbeda menunjukkan paduan zirlo-Mo yang menunjukkan domain paduan tersebut tidak *spherically isotropic*^[2,3].



Gambar 6. Variasi *microstrain* sebagai fungsi perlakuan pada paduan Zirlo.



Gambar 7. Variasi *microstrain* sebagai fungsi perlakuan pada paduan Zirlo-Mo.

SIMPULAN

Proses perlakuan *quenching* dan perolan panas pada paduan zirlo dan zirlo-Mo mengakibatkan deformasi yang berpengaruh terhadap orientasi bidang, ukuran kristalit dan *microstrain* pada paduan. Diperoleh nilai *microstrain* pada ingot awal, setelah proses *quenching* dan setelah rol panas yang tersebar menunjukkan tidak *spherically isotropic* pada domain kristalit untuk paduan zirlo maupun zirlo-Mo. Penambahan unsur Mo pada paduan zirlo, memberikan peningkatan terhadap besaran rerata ukuran domain terboboti volume (ukuran kristalit) dan *microstrain* dari paduan zirlo tanpa penambahan unsur Mo.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. Mukherjee, P. et al., (2004), *Deformation Characteristics of Rolled Zirconium Alloys: a study by X-ray diffraction line profile analysis*, Acta Materialia 52, pp5678-5696.
- [2]. Kapoor, K. et al., (2004). X-ray Diffraction Line Profile Analysis For Defect Study In Zr-2.5%Nb Material, Bull. Mater.Sci., Vol.27 No.1, pp59-67.
- [3]. Sarkar, A.; Mukherjee, P. Barat, (2008), *X-ray Diffraction Studies On Asymmetrically Broadened Peaks Of Heavily Deformed Zirconium-Based Alloys*, Materials Science and Engineering A 485, pp.176-181.
- [4]. Anonim, *Crystallography Open Database*, 23 Oktober 2012.